

RADIOCARBONE - III

LA MESURE DES AGES PAR LE RADIOCARBONE

(4^{ème} partie)

11. COMPARAISON DES DETECTEURS

Le tableau du § 9 (dans l'article précédent) établit une comparaison entre les principales caractéristiques de différentes installations et entre les âges maxima qu'elles permettent de mesurer.

La comparaison des caractéristiques et des performances des compteurs Geiger-Müller développés par ANDERSON et LIBBY avec celles des compteurs proportionnels est nettement en faveur de ces derniers.

Ceux-ci ont des performances supérieures tout en utilisant une quantité de carbone moindre (1 à 2 gr. au lieu de 8 gr.) et en évitant les possibilités de contamination.

Parmi les différents compteurs proportionnels dont les caractéristiques sont données, le compteur M.B.L.E., construit suivant le principe du compteur Oeschger, se distingue nettement par l'âge élevé qu'il permet de mesurer, avec un très faible poids d'échantillon.

De plus, comme on l'a vu plus haut, il permet d'utiliser un château de plomb de volume et de poids réduits.

Enfin, la sécurité de fonctionnement du compteur rempli à l'acétylène et la facilité de la préparation de ce gaz accroissent encore les avantages de cette méthode. C'est seulement dans le cas où l'on dispose d'échantillons de poids important et où la durée des opérations de datage n'intervient pas, qu'un compteur au CO₂ sous pression peut avoir des performances plus intéressantes que le compteur M.B.L.E.

Les cellules scintillantes ne sont intéressantes que lorsqu'on peut utiliser des échantillons très importants (60 gr. et plus). Cependant, la difficulté de la préparation chimique rend cette méthode peu pratique et peu économique pour les mesures de routine.

Le choix entre compteur proportionnel et scintillateur est proposé de la manière suivante par quelques physiciens qui ont utilisé et perfectionné la méthode de scintillation :

"On peut dire que la simplicité du point de vue de la chimie et de l'électronique et la faible quantité d'échantillon nécessaire avec le compteur à gaz font recommander cette méthode pour le datage des échantillons courants et que la méthode employant les scintillateurs doit trouver sa principale application dans l'étude précise d'échantillons récents et le datage d'échantillons très anciens." **F.N. HAYES, E.C. ANDERSON, J.R. ARNOLD**, Détermination de l'activité du radiocarbone par scintillateur liquide (Deuxième conférence sur les utilisations pacifiques de l'énergie atomique, Genève 1958).

12. APPAREILLAGE ELECTRONIQUE

Il est indispensable de disposer, dans une **installation de datage**, d'appareils électroniques parfaitement sûrs. Le comptage des parasites électriques peut en effet amener des erreurs importantes de mesure. Dans une installation où le signal du carbone moderne est de **10 cpm, deux impulsions par heure, dues à des parasites électriques**, entraînent une **erreur de 1.000 ans pour un échantillon de 28.000 ans**. L'erreur est évidemment d'autant plus importante que l'échantillon mesuré est ancien.

Parmi les causes les plus fréquentes d'impulsions parasites, il faut mentionner les chemins de fuite de l'isolement des compteurs proportionnels, les défauts intermittents dans l'isolement des câbles et des condensateurs haute tension, les inductions et les parasites provenant du secteur.

L'installation doit être entièrement protégée contre ces défauts.

L'alimentation est faite au travers d'un filtre secteur arrêtant toutes les fréquences **de 1.000 c/s à 10 Mc/s**.

Les appareils sont placés dans une armoire métallique entièrement fermée. Les détecteurs et tous les câbles sont blindés et reliés à la masse commune de l'installation. Enfin, câbles et condensateurs à haute tension sont choisis avec un très grand facteur de sécurité par rapport aux caractéristiques garanties par les constructeurs.

La composition de l'installation varie légèrement suivant que le détecteur utilisé est un **compteur proportionnel** ou un **scintillateur**. Dans les deux cas, les impulsions provenant du détecteur sont, après amplification, envoyées dans un sélecteur d'impulsions. Les seuils inférieur et supérieur sont réglés de manière à conserver uniquement le centre du spectre du C₁₄. Le discriminateur inférieur élimine le bruit de fond de l'amplificateur et, partiellement, des photomultiplicateurs.

Le discriminateur supérieur élimine le mouvement propre dû aux rayonnements alpha ou aux mésons. Ces deux niveaux de discrimination sont choisis de manière à rendre maximum le rapport **n/\sqrt{m}** dont dépend la qualité de l'installation.

Deux échelles de comptage sont généralement utilisées. La première, placée après le circuit d'anticoïncidence dans le cas d'un **compteur proportionnel** ou après le circuit de coïncidence dans le cas d'un **scintillateur**, enregistre les impulsions dues à l'échantillon et au mouvement propre résiduel. La seconde, placée avant le circuit de coïncidence ou d'anticoïncidence, enregistre l'activité de l'échantillon et le bruit de fond total de l'installation. Cette mesure permet de vérifier le fonctionnement normal de celle-ci.

Les **mesures** durant généralement **de 12 à 48 heures**, il est utile d'adjoindre à l'installation un imprimeur ou un enregistreur donnant, en chiffres ou en graphique, les temps s'écoulant entre chaque **10^e, 50^e ou 100^e impulsion**. Un défaut de fonctionnement de l'installation, absence partielle des impulsions ou impulsions parasites, se traduit par des intervalles de temps anormalement courts ou longs.

Les figures 10 et 11 donnent la composition des installations électroniques nécessaires à l'utilisation d'un **scintillateur** et d'un **compteur proportionnel**.

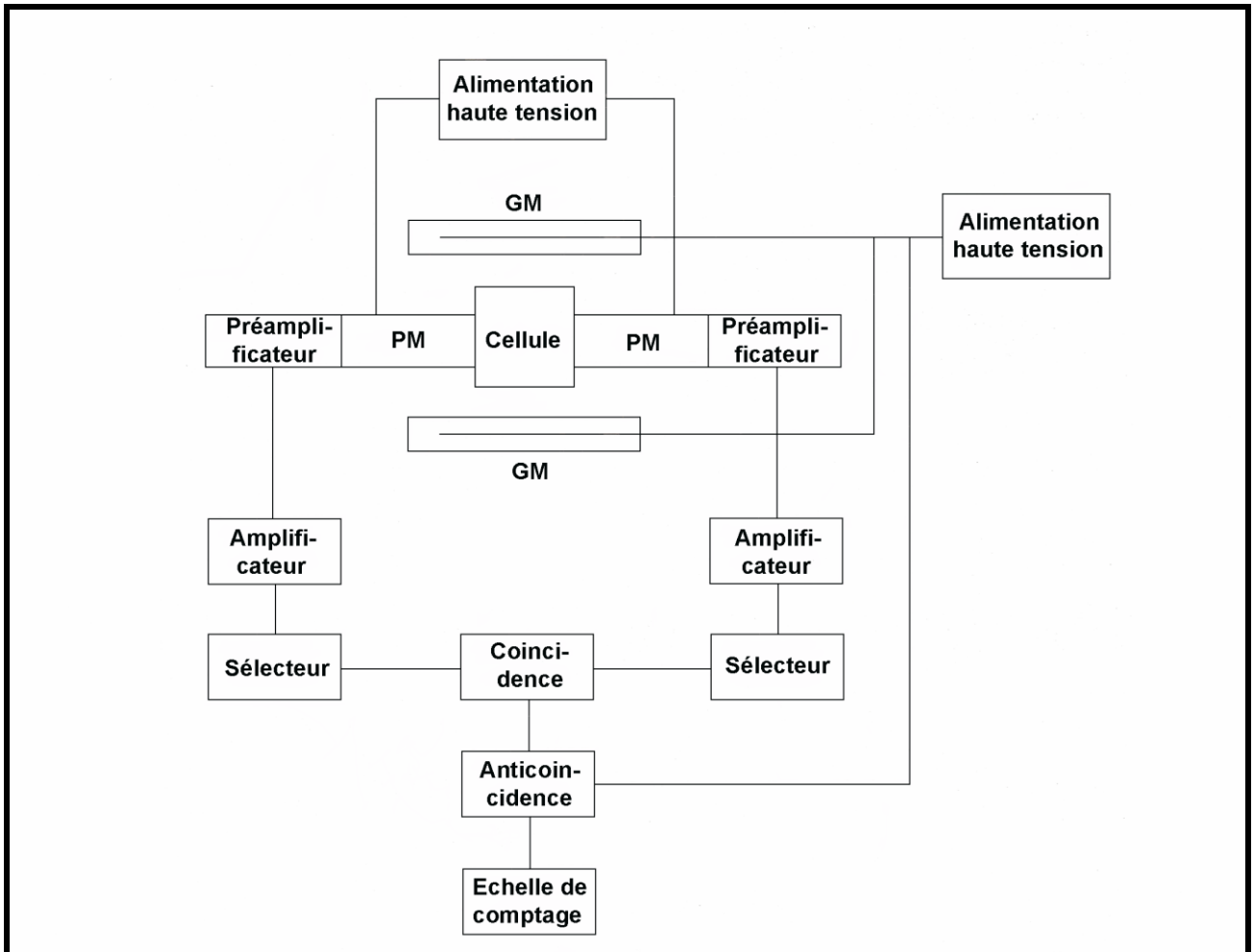


Fig. 10 - Principe de l'installation électronique du dispositif de datage par scintillation.

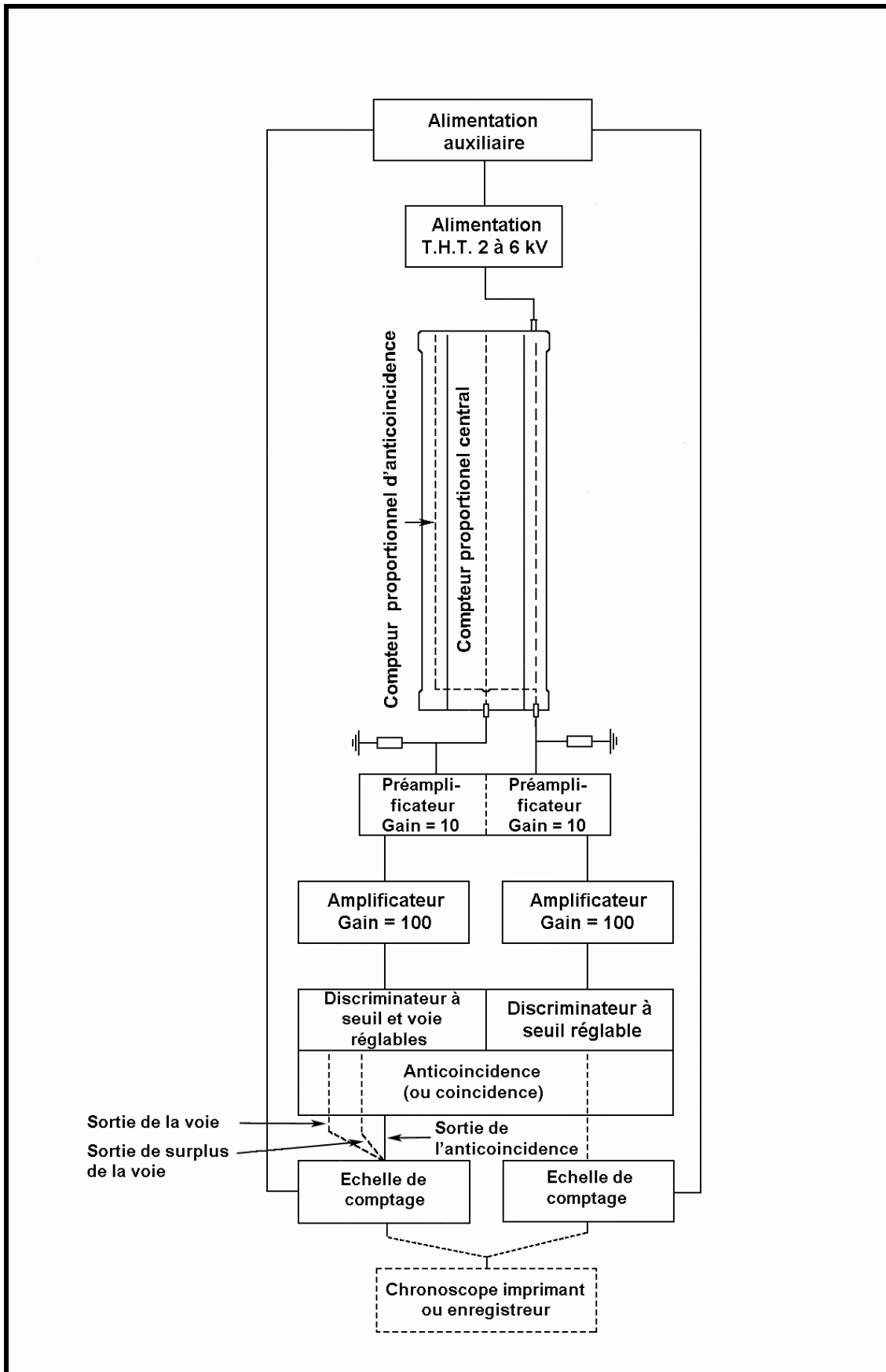


Fig. 11 - Principe de l'installation électronique du compteur proportionnel M.B.L.E, avec anticoïncidence.

13. PRECISION DES MESURES

Les causes d'imprécision dans la mesure des âges par le radiocarbone sont dues, à la fois, à la méthode elle-même et à la technique de mesures.

a. *Demi-vie.*

La demi-vie du radiocarbone, base de calcul des âges, est estimée par LIBBY à 5.568 ± 30 ans. Cette valeur est déterminée à partir des meilleures mesures expérimentales. L'erreur due à cette incertitude est systématique et n'affecte pas la chronologie des échantillons.

b. *Variations de composition isotopique du carbone.*

On a signalé les variations de la composition isotopique du carbone, notamment entre échantillons d'origine végétale et minérale. Ces variations étant constantes et pouvant être contrôlées au spectromètre de masse, ne doivent théoriquement pas affecter la précision de la mesure.

c. *Fractionnement isotopique en laboratoire.*

La plupart des méthodes de préparation chimique de l'échantillon ne permettent d'introduire que 50 à 70% du carbone de l'échantillon dans le produit de synthèse destiné au détecteur. On a pu constater¹, dans certaines méthodes de transformation, un appauvrissement de 1 à 3% du C₁₄. Cette erreur s'introduisant à la fois dans la mesure du carbone récent et dans l'échantillon à mesurer ne doit pas affecter sensiblement la précision. Une correction par spectrographie de masse est toujours possible.

d. *Contamination de l'échantillon.*

L'échantillon peut être contaminé dans le site par du carbone plus récent. Cette contamination peut être partiellement éliminée par une préparation attentive de l'échantillon. L'erreur due à cette contamination ne peut que "rajeunir" l'échantillon.

Des radio-isotopes peuvent également s'introduire dans l'échantillon au cours de sa transformation chimique. Le danger de contamination par les retombées radioactives est grand dans la méthode de mesure par Geiger-Müller sur carbone solide, et faible dans la méthode par scintillateur liquide et par compteur proportionnel à gaz².

L'introduction de radon et de thoron au cours de la préparation chimique est inévitable. Pour les éliminer par leur croissance naturelle, transformés en gaz ou introduits dans un scintillateur liquide, ils sont maintenus en récipient scellé pendant 3 à 5 semaines avant d'être mesurés.

¹ M. RUBIN, H.E. SUESS, *Tellus*, Vol. 9, 24 (1957).

² H. BARKER, C.J. MACKEY, *Am. Journal of Science*, Vol. 1, 81 (1959).

e. *Imprécisions de la mesure d'activité.*

Un calcul d'erreurs complet permet de déterminer l'imprécision de la mesure due à la fluctuation statistique de la radioactivité ³. Signalons à titre d'exemple que pour l'installation M.B.L.E, l'erreur de comptage varie de 0,7% pour un échantillon récent à 3,5% pour un échantillon de 25.000 ans.

f. *Poids de l'échantillon mesuré et rendement du détecteur.*

Dans la *mesure par scintillateur liquide*, il est aisé de mesurer avec précision la quantité de produit synthétisé à partir de l'échantillon qui est introduit dans le détecteur. Une variation de la composition du mélange scintillant ou de la teneur en oxygène dissous dans celui-ci peut cependant entraîner une atténuation ou un déplacement du spectre lumineux du C₁₄. Ces facteurs peuvent affecter sensiblement la précision des résultats.

Dans un *compteur proportionnel gazeux*, la quantité de carbone est déterminée par la pression et la température du gaz. Généralement, la pression est mesurable avec une précision satisfaisante. La température est celle des parois du détecteur. Si celle-ci n'est pas mesurée, une *erreur de 2° C* maximum peut être faite, entraînant une *imprécision de 0,7%*.

Les variations de pression dans un compteur à gaz entraînent également des variations dans la hauteur des impulsions et, par l'action du seuil de discrimination, dans la mesure du mouvement propre et dans celle de l'échantillon. La correction nécessaire peut être déterminée expérimentalement ⁴.

14. SIGNIFICATION DES MESURES

Les différentes imprécisions de mesure sont réunies en une *seule déviation standard* toujours mentionnée avec l'âge mesuré (par exemple 3.500 ± 200 ans).

L'âge réel d'un échantillon a *68% de chance* de se trouver à moins d'une *déviation standard* de l'âge mesuré (donc *entre 3.300 et 3.700 ans* pour l'exemple ci-dessus), *95,4%* d'être à moins de *deux déviations standard* (entre *3.100 et 3.900 ans*, et *99,7%* d'être à moins de *trois déviations standard* (entre *2.900 et 4.100 ans*).

Lorsqu'on veut déterminer la *chronologie de deux échantillons*, il y a lieu de tenir compte des *déviations standard des deux mesures*. La chronologie ne peut être établie que si la différence des deux âges est nettement supérieure à la déviation des mesures (p.ex. deux échantillons datés 3.500 ± 200 ans et 3.100 ± 200 ans ont une *différence de 400 ± 280 ans* ; il y a encore environ *1 chance sur 4* pour que le second soit en réalité plus ancien que le

³ - E.H. CREVECOEUR, A. VANDER STRICHT, P.C. CAPRON, *Ac. Royale de Belgique - Bull. Classe des Sciences*, Tome XLV, 1959-9.

- A. DIETHORN, *A Methane proportional counter system for natural radio-carbon measurements*, Carnegie Institute of Technology, Pittsburg, Penn. (1954).

⁴ A. DIETHORN, *A Methane proportional counter system for natural radiocarbon measurements*, Carnegie Institute of Technology, Pittsburg, Penn. (1954).

premier).

15. INTERETS HISTORIQUE ET SCIENTIFIQUE DE LA DETERMINATION DES AGES

Plusieurs milliers de dates ont été établies par la méthode du radiocarbone, apportant une aide considérable aux travaux des archéologues.

Les **plus anciens signes d'activité humaine aux Etats-Unis** ont été établis à **37.000 ans**. Les mesures faites au laboratoire de Chicago ont permis de suivre, **depuis 8.000 ans av. J.C.**, **l'apparition de l'agriculture** dans diverses parties du continent américain et les progrès des civilisations indiennes.

La **civilisation maya**, au **Guatemala**, disposait d'un calendrier qui pouvait être lié au nôtre par une **corrélation d'événements astronomiques**. Deux corrélations étaient possibles pour une date inscrite sur le linteau de bois d'un monument maya : **30 octobre 481 ou 30 juin 741**. Des mesures faites à Chicago donnèrent pour l'âge du linteau **l'an 461 ± 80 ans**, confirmants ainsi la première corrélation.

En **Afrique du Sud**, des **charbons de bois** provenant de sites de l'âge de la pierre ont été datés au British Museum à **18.200 ± 500 ans**.

En **Grande-Bretagne**, du **bois de chêne**, provenant d'une forêt submergée par la mer, aux environs du **Mont-St-Michel (Cornouailles)**, a été daté à **3.660 ± 150 ans**. Une ancienne tradition plaçait effectivement, au milieu d'une forêt, le **Mont-St-Michel**, aujourd'hui isolé dans la mer.

La détermination des âges par le radiocarbone a également apporté une importante contribution à l'étude du **Pléistocène**. On a pu montrer en particulier la **simultanéité du retrait de la dernière période glaciaire en Europe et aux Etats-Unis**. Ce phénomène s'est produit il y a deux fois moins longtemps que ne l'avaient supposé les géologues.

Le **datage par le radiocarbone** est particulièrement utile pour **l'étude des premières manifestations de l'activité humaine**. Il apporte une confirmation souvent importante aux connaissances des époques protohistoriques et historiques.

La même méthode enfin a été utilisée avec succès pour **l'étude des mouvements océaniques**.

Ces quelques exemples montrent la diversité des problèmes susceptibles d'être résolus par la connaissance de l'âge de certains échantillons. Les résultats particulièrement intéressants fournis par le procédé de datage au moyen du radiocarbone ont incité des chercheurs, appartenant à différentes disciplines, à soumettre leurs documents à cette méthode de détermination des âges.

Actuellement, la multiplicité des échantillons à dater est telle que beaucoup de pays, et particulièrement la Belgique, se trouvent devant la nécessité de créer un nombre sans cesse croissant de laboratoires de mesure des âges par le radiocarbone.

NOTES PERSONNELLES (Robert Six)

I. MES PREMIERS PAS EN PHYSIQUE NUCLEAIRE

Ayant rejoint la société M.B.L.E. le 1 juillet 1961, au lendemain de la fin de mon service militaire, je fus affecté au département de Physique nucléaire où j'avais effectué près de neuf mois de stage avant d'être appelé sous les drapeaux. Raymond SCHAYES, le chef du département me confia la tâche de mettre au point des compteurs proportionnels destinés à la radio-datation. Afin de m'initier à la théorie et à la technologie de ce domaine, je fus envoyé à plusieurs reprises à l'Université de Berne. Cette institution comportait un Institut de physique dirigé par Friedrich Georg HOUTERMANS qui avait incité un de ses collaborateurs, Hans OESCHGER, à créer au sein de celui-ci un laboratoire de datation au ^{14}C . C'est sous la férule de ce dernier que j'acquis toutes les connaissances et compétences nécessaires. Ce fut une des périodes de ma vie professionnelle les plus exaltantes.

SCHAYES était un ingénieur civil électromécanicien sortant de l'ULB, aux idées larges et très bon enfant. Il était agréable de travailler sous ses ordres car, il débordait d'idées innovantes dans le domaine de la technologie nucléaire. Il était reconnu dans le milieu scientifique international en relation avec sa spécialité. C'est ainsi qu'il m'envoya à Berne, ayant des rapports suivis avec Friedrich HOUTERMANS et Hans OESCHGER.

II. DESCRIPTION SUCCINCTE DU COMPTEUR PROPORTIONNEL

Le compteur conçu en partenariat avec l'Institut de Berne était d'un type tout à fait spécial et a fait l'objet d'un brevet. Il consistait en un cylindre d'acier contenant deux compteurs proportionnels concentriques. Le premier périphérique servait de couronne d'anti-coïncidence au compteur central. Celle-ci permettait de supprimer la quasi-totalité des impulsions du compteur central dues à des radiations externes provenant principalement des rayons cosmiques et d'émetteurs gamma. L'échantillon à mesurer était introduit dans le cylindre par une vanne de remplissage, sous forme d'un gaz (méthane, éthylène). Les deux compteurs étaient séparés par un réseau de fil de 150 μ de diamètre. Au centre du compteur central était tendu un fil anodique, de 0,04 mm, suivant l'axe de celui-ci et isolé de l'enceinte, et soumis à une haute tension (fig. 8, article 3^{ème} partie).

La mise au point de ce genre d'équipement était ardue car j'étais confronté à différents problèmes tels que l'étanchéité des joints de téflon qui devaient isoler l'anode, la maîtrise de l'installation chimique servant à extraire le carbone des échantillons à mesurer et bien d'autres. Il y avait également la mise au point de l'installation électronique comportant l'alimentation haute tension, la détection des signaux, leur amplification, leur comptage et le transfert sous forme de graphique.

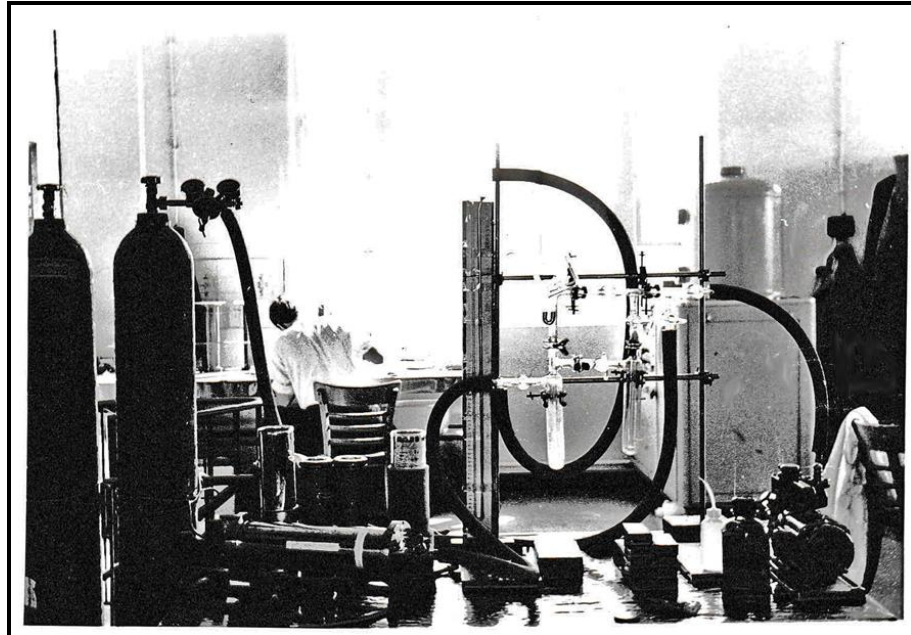


Fig. 2 – Mon installation chimique permettant d'extraire le carbone de l'échantillon et de l'incorporer à un gaz (méthane, propane)

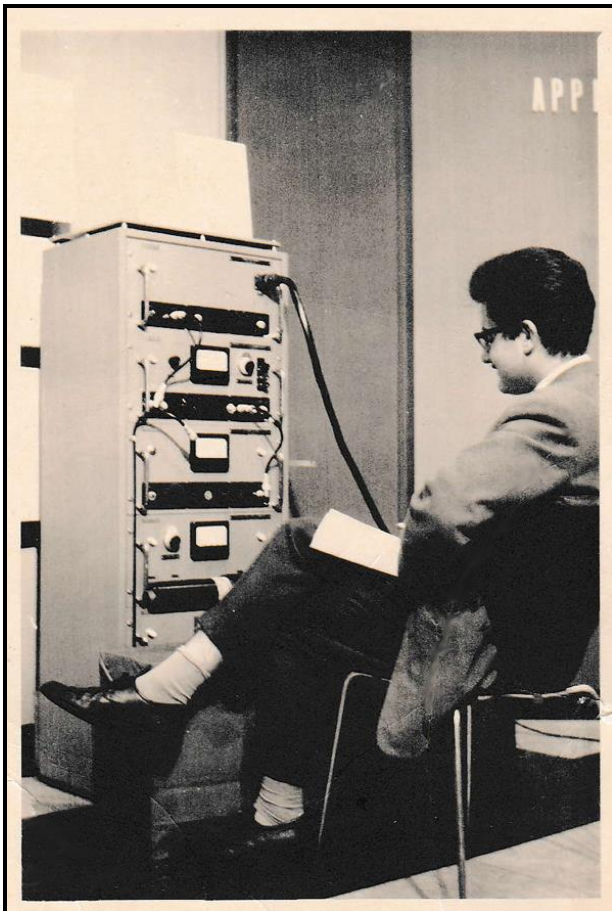


Fig. 3 – L'installation électronique développée par la M.B.L.E.

La production se faisait à la pièce ou en très petite série de quelques équipements. J'ai ainsi fourni des installations complètes à la faculté de physique de l'UCL, au laboratoire du Patrimoine artistique, à l'Agence pour l'énergie atomique à Vienne, à la société pétrolière « Géopétrole ».